

未来社会創造事業（探索加速型）
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
終了報告書（探索研究）

令和 3 年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:北岡 卓也]

[九州大学 大学院農学研究院・教授]

[研究開発課題名:ナノセルロースの界面触媒反応による木質模倣微粒子の創出]

実施期間：令和 3 年 10 月 1 日～令和 8 年 3 月 31 日

§1. 研究実施体制

(1)「木質模倣微粒子開発」グループ（九州大学）

① 研究開発代表者: 北岡 卓也（九州大学 大学院農学研究院・教授）

② 研究項目

- ・ピッカリングエマルジョン鋳型法による木質微粒子の合成
- ・コア-シェル型ナノ構造体および人工リグニンの構造解析
- ・化粧品用途適性評価および海洋分解性評価の計画策定

§2. 研究開発成果の概要

本研究では、自然生態系における長期的な炭素貯留が可能で、海洋微生物により生分解可能な木質模倣型の真球微粒子を開発した。樹木由来セルロースナノファイバー (CNF) の両親媒性を活用し、油状のリグニン前駆体アナログを乳化した後、それを鋳型として酵素重合を行うことで、コア-シェル構造の微粒子を合成した。カルボキシ化・硫酸化・リン酸化を施した CNF でイソオイゲノールを乳化し、西洋わさびペルオキシダーゼ (HRP) を用いる室温・有機溶媒フリーの反応を実施した結果、最大収率 80%、粒径 1.4~5.2 μm 、真球度 0.98 以上の微粒子合成に成功した。CNF 層は約 3 μm 径の粒子表面に約 70 nm の厚さで均一に分布し、CNF の重量比がわずか 2.8% にもかかわらず、微粒子の安定化に有効であった。得られた微粒子はほぼ白色であったが SPF30 と同程度の日焼け止め効果を示し、触感はやわらかく皮膚表面からの水分移動が抑制された。さらに、コア構造の多様化を目的として、G 型リグニン構造アナログのイソオイゲノールのホモログ 3 種類と H 型・S 型リグニンのホモログ化 4 種類を試み、計 11 種類のリグニン前駆体アナログの高収率合成に成功した (収率 75-92%)。H 型リグニン前駆体アナログを用いて、HRP および高耐熱性ラッカーゼによる重合を行ったところ、真球微粒子が得られた。白色微粒子に加えて、黒色のリグニン微粒子-CNf フィルムの開発も実施した。水系で工業リグニンを微粒子状に析出させ、表面改質 CNF と混合して鉄イオンでゲル化させることで、高いゲル化特性と優れたチキソトロピー性を併せ持つ、造膜可能な黒色微粒子の合成に成功した。農業用マルチや種子コーティング剤としての応用に期待が持たれる。樹木の二大成分の CNF とリグニンを用いて、CNF のナノ構造・界面特性に着目した新規複合化手法により、天然の木質構造を模倣した真球微粒子および成形体の開発に成功した。これにより、多様な素材用途への展開が可能になり、脱炭素社会の実現と SDGs 達成への貢献に期待が持たれる。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Yuna Tanaka, Qi Li, Mayumi Hatakeyama, Takuya Kitaoka, "Synthesis and Structural Design of Microspheres Comprising Cellulose Nanofibers and Artificial Lignin Polymer by Enzyme-mediated Pickering Emulsion Templating", *RSC Sustainability*, **2**(5), 1580-1589 (2024). DOI: 10.1039/D4SU00067F
- 2) 北岡卓也 (分担執筆)、「セルロースナノファイバーで被覆された木質模倣真球微粒子の合成」、ピッカリングエマルジョン技術における課題と応用、株式会社シーエムシー出版、東京、pp. 82-90、2024 年。
- 3) Yuna Tanaka, Naoya Fukuda, Naliharifetra Jessica Ranaivoarimanana, Mayumi Hatakeyama, Takuya Kitaoka, "Preparation of Spherical Microparticles Composed of Cellulose Nanofiber and Cellulose Diacetate via Pickering Emulsion Templating", *BioResources*, **18**(1), 1482-1492 (2023). DOI: 10.15376/biores.18.1.1482-1492